

FILM-LIKE ADHESIVE FOR CONNECTING CIRCUIT, CONNECTING STRUCTURE OF CIRCUIT TERMINAL, AND METHOD FOR CONNECTING THE SAME

Patent number: JP2002164389
Publication date: 2002-06-07
Inventor: OTA SATORU; NAGAI AKIRA; YUSA MASAMI
Applicant: HITACHI CHEMICAL CO LTD
Classification:
- international: C09J4/00; C09J7/00; C09J9/02; H01L21/60; C09J4/00;
C09J7/00; C09J9/00; H01L21/02; (IPC1-7): H01L21/60;
C09J4/00; C09J7/00; C09J9/02
- european:
Application number: JP20000363107 20001129
Priority number(s): JP20000363107 20001129

[Report a data error here](#)

Abstract of JP2002164389

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a film-like adhesive for connecting a circuit, capable of connecting in a short time and having superior adhesive properties, connecting reliability and storage stability, and connecting structure of a circuit terminal, and to provide a method for connecting the circuit terminal. **SOLUTION:** The film-like adhesive for connecting the circuit is interposed between opposed circuit electrodes to electrically connect between the electrodes in pressurizing direction, by heating and pressurizing the opposed electrodes. The adhesive comprises (1) an acrylate compound, having two or more radical polymerizable functions, (2) a thermoplastic resin having a melt viscosity at a glass transition temperature of 50 to 150 deg.C of 10,000 Pa.s or less, (3) an organic peroxide, and (4) a silane coupling agent, having a radical polymerizable functional group as indispensable components so that a heating start temperature is 100 to 150 deg.C. The method for connecting the circuit terminal comprises the steps of disposing a first circuit material having a first connection terminal, and a second circuit material having a second connection terminal so that the first terminal is made oppose the second terminal; making the film-like adhesive for connecting the circuit to be interposed between the first terminal and second terminal disposed opposite; and electrically connecting the first terminal disposed opposite to second terminals.

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

6/7

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-164389

(P2002-164389A)

(43) 公開日 平成14年6月7日 (2002.6.7)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マコード [*] (参考)
H 0 1 L 21/60	3 1 1	H 0 1 L 21/60	3 1 1 S 4 J 0 0 4
C 0 9 J 4/00		C 0 9 J 4/00	4 J 0 4 0
7/00		7/00	5 F 0 4 4
9/02		9/02	

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2000-363107(P2000-363107)

(22) 出願日 平成12年11月29日 (2000. 11. 29)

(71) 出願人 000004455

日立化成工業株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目1番1号

(72) 発明者 大田 悟

茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式
会社総合研究所内

(72) 発明者 永井 朗

茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式
会社総合研究所内

(72) 発明者 湯佐 正己

茨城県つくば市和台48 日立化成工業株式
会社総合研究所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 回路接続用フィルム状接着剤、回路端子の接続構造および回路端子の接続方法

(57) 【要約】

【課題】 短時間接続が可能で、接着性、接続信頼性、保存安定性に優れる回路接続用フィルム状接着剤、回路端子の接続構造および回路端子の接続方法を提供する。

【解決手段】 相対向する回路電極間に介在され、相対向する回路電極を加熱加圧し加圧方向の電極間を電気的に接続する回路接続用フィルム状接着剤であって、

(1) ラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物、(2) ガラス転移温度が50℃以上で150℃の熔融粘度が10000Pa・s以下の熱可塑性樹脂、

(3) 有機過酸化物、(4) ラジカル重合性の官能基を有するシランカップリング剤を必須成分とし、発熱開始温度が100℃以上、150℃以下である回路接続用フィルム状接着剤。第一の接続端子を有する第一の回路部材と、第二の接続端子を有する第二の回路部材とを、第一の接続端子と第二の接続端子を対向して配置し、前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子の間に前記の回路接続用フィルム状接着剤を介在させ、加熱加圧して前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子を電気的に接続させる回路端子の接続方法。

FP04-0469-

00WD-XX

05.2.15

SEARCH REPORT

【特許請求の範囲】

【請求項1】 相対向する回路電極間に介在され、相対向する回路電極を加熱加圧し加圧方向の電極間を電氣的に接続する回路接続用フィルム状接着剤であって、

(1) ラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物またはメタクリレート化合物、(2) ガラス転移温度が50℃以上で、150℃の熔融粘度が10000Pa・s以下の熱可塑性樹脂、(3) 有機過酸化物、(4) ラジカル重合性の官能基を有するシランカップリング剤を必須成分とし、発熱開始温度が100℃以上、150℃以下である回路接続用フィルム状接着剤。

【請求項2】 (1) ラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物またはメタクリレート化合物を25～100重量部、(2) ガラス転移温度が50℃以上で、150℃の熔融粘度が10000Pa・s以下の熱可塑性樹脂100重量部、(3) 有機過酸化物をラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物またはメタクリレート化合物100重量部に対し1～20重量部、(4) ラジカル重合性の官能基を有するシランカップリング剤を(1)～(3)の総重量100重量部に対し5～15重量部配合する請求項1に記載の回路接続用フィルム状接着剤。

【請求項3】 有機過酸化物が室温(25℃)で粉体であり、且つ、1分間の半減期分解温度が180℃以下であり、且つ、100時間の半減期分解温度が40℃以上である請求項1または請求項2に記載の回路接続用フィルム状接着剤。

【請求項4】 導電性粒子をさらに含有する請求項1ないし請求項3のいずれかに記載の回路接続用フィルム状接着剤。

【請求項5】 第一の接続端子を有する第一の回路部材と、第二の接続端子を有する第二の回路部材とが、第一の接続端子と第二の接続端子を対向して配置されており、前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子の間に請求項1ないし請求項4のいずれかに記載の回路接続用フィルム状接着剤が介在されており、前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子が電氣的に接続されている回路端子の接続構造。

【請求項6】 第一の接続端子を有する第一の回路部材と、第二の接続端子を有する第二の回路部材とを、第一の接続端子と第二の接続端子を対向して配置し、前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子の間に請求項1ないし請求項4のいずれかに記載の回路接続用フィルム状接着剤を介在させ、加熱加圧して前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子を電氣的に接続させる回路端子の接続方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、相対向する回路電極間に介在され、相対向する回路電極を加圧し加圧方向

の電極間を電氣的に接続する回路接続用フィルム状接着剤、回路端子の接続構造および回路端子の接続方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 エポキシ樹脂系接着剤は、高い接着強さが得られ、耐水性や耐熱性に優れること等から、電気・電子・建築・自動車・航空機等の各種用途に多用されている。中でも一液型エポキシ樹脂系接着剤は、主剤と硬化剤との混合が不要であり使用が簡便なことから、フィルム状、ペースト状、粉体状の形態で使用されている。この場合、エポキシ樹脂と硬化剤及び変性剤との多様な組み合わせにより、特定の性能を得ることが一般的である(例えば、特開昭62-141083号公報)。しかしながら、特開昭62-141083号公報に示されるようなエポキシ樹脂系のフィルム状接着剤は、作業性に優れるものの、20秒前後の接続時間で140～180℃程度の加熱、10秒では180～210℃程度の加熱が必要であった。この理由は、短時間硬化性(速硬化性)と貯蔵安定性(保存性)のバランスを得るため常温で不活性な触媒型硬化剤を用い硬化に際して十分な反応が得られないためである。

【0003】 近年、精密電子機器の分野では、回路の高密度化が進んでおり、電極幅、電極間隔が極めて狭くなっており、回路接続時の熱による回路基板の膨張が接続端子の位置ずれに影響する場合がある。特に、液晶パネル分野のLCD(液晶ディスプレイ)とTCP(テープキャリアパッケージ)との接続や、TCPとPWB(プリント回路基板)との接続において、配線の微細化とパネルの大型化の為、従来のエポキシ樹脂系を用いた回路接続用フィルム状接着剤の接続条件では、接続時の熱によるTCPの伸びによって配線の脱落、剥離や位置ずれが生じるなどの問題があった。この為、エポキシ樹脂系接着剤に代わり、低温速硬化の接続材料としてラジカル重合性の接着剤が開発されてきた(例えば、特開平11-284025号公報、特開2000-44905号公報)。特開平11-284025号公報および特開2000-44905号公報に示されるようなラジカル重合性の接着剤は、ラジカル重合性物質としてアクリレート化合物、メタアクリレート化合物またはマレイミド化合物等のモノマーを過酸化物などのラジカル発生物質と配合し、加熱時に過酸化物から発生するラジカルによってモノマーがラジカル重合・硬化するものである。ラジカル発生物質のラジカル発生温度が低温の物質を選択することによって低温での硬化が可能であることが特徴であり、150℃前後の加熱温度、10秒～15秒の加熱時間で接続が可能である。しかし、一般的にエポキシ樹脂系の接着剤に比べ、アクリレート化合物などの熱ラジカル重合性樹脂は接着力が弱いという難点がある。このため、特開平11-284025号公報に示されるようにリン酸エステル化合物によって接着力を向上させる方法や、特開2

000-44905号公報に示されるようにリン酸エステル化合物とエポキシシランカップリング剤との混合によって接着力を向上させる手段が提案されている。

【0004】一方、液晶パネル分野でもLCD上にドライバICを直接接続するCOG (Chip on Glass) 接続方式では、生産効率向上を目的として、10秒以下さらには5秒以下の短時間での接続が求められている。COG接続方式では液晶パネルであるガラスの熱膨張係数とドライバICであるシリコンチップの熱膨張係数が近く、加熱によって生ずる位置ずれの問題が小さいため、接続時間の短縮化要求に対して接続温度を高温化して対処することができる。しかしながら、特開昭62-141083号公報に示されるようなエポキシ樹脂系接着剤では230℃以上の加熱温度であっても、5秒以下では十分に硬化反応が進行しないため、接着強度が小さく、接続信頼性が低下する。一方、特開平11-284025号公報および特開2000-44905号公報で示されるようなラジカル重合性の接着剤については、硬化速度はエポキシ樹脂系に比べて速いものの、リン酸エステルまたはリン酸エステルとエポキシシランカップリング剤で接着力を増加させた場合であっても接着力が不十分である。これは、TABとLCDを接着した場合よりもチップとLCDを接着した場合に発生する応力が大きいと思われる。さらに、短時間で反応させるためには、反応性の高いモノマーを使用する必要があるが、一般的に反応性の高いモノマーを使用した場合、室温などの保存環境においても反応が進行するため、樹脂の流動性低下や接着性低下がおきるため十分な接続信頼性を得ることができない。このため、より短時間で接続でき、且つ、保存安定性の良好な回路接続用フィルム状接着剤が求められている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、精密電子機器の微細回路同士の電気的接続、特にLCDパネルとドライバICのCOG接続において、短時間接続が可能であり、且つ、接着性、接続信頼性、保存安定性に優れた回路接続用フィルム状接着剤、回路端子の接続構造および回路端子の接続方法を提供するものである。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明の回路接続用フィルム状接着剤は、相対向する回路電極間に介在され、相対向する回路電極を加熱加圧し加圧方向の電極間を電気的に接続する回路接続用フィルム状接着剤であって、

(1) ラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物またはメタクリレート化合物、(2) ガラス転移温度が50℃以上で、150℃の熔融粘度が10000Pa・s以下の熱可塑性樹脂、(3) 有機過酸化物、(4) ラジカル重合性の官能基を有するシランカップリング剤を必須成分とし、発熱開始温度が100℃以上、150℃以下である回路接続用フィルム状接着剤である。そして、好ましくは、(1) ラジカル重合性の2官能以上の

アクリレート化合物またはメタクリレート化合物を25～100重量部、(2) ガラス転移温度が50℃以上で、150℃の熔融粘度が10000Pa・s以下の熱可塑性樹脂100重量部、(3) 有機過酸化物をラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物またはメタクリレート化合物100重量部に対し1～20重量部、(4) ラジカル重合性の官能基を有するシランカップリング剤を(1)～(3)の総重量100重量部に対し5～15重量部配合する回路接続用フィルム状接着剤である。有機過酸化物は室温(25℃)で粉体(固体)のものが好ましく、且つ、1分間の半減期分解温度が180℃以下であり、且つ、100時間の半減期分解温度が40℃以上であるものが好ましい。上記の回路接続用フィルム状接着剤には、導電性粒子を含有することができる。

【0007】本発明の回路端子の接続構造は、第一の接続端子を有する第一の回路部材と、第二の接続端子を有する第二の回路部材とが、第一の接続端子と第二の接続端子を対向して配置されており、前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子の間に上記の回路接続用フィルム状接着剤が介在されており、前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子が電気的に接続されているものである。本発明の回路端子の接続方法は、第一の接続端子を有する第一の回路部材と、第二の接続端子を有する第二の回路部材とを、第一の接続端子と第二の接続端子を対向して配置し、前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子の間に上記の回路接続用フィルム状接着剤を介在させ、加熱加圧して前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子を電気的に接続させるものである。接続端子の少なくとも一方の表面が金、銀、錫及び白金族から選ばれる金属で構成させることができる。

【0008】

【発明の実施の形態】本発明の回路接続用フィルム状接着剤は加熱・加圧によって流動すると共に、加熱によってアクリレート化合物またはメタクリレート化合物が反応し、硬化するものであって、ラジカル重合性のシランカップリング剤のカップリング効果によって接着力を発現する接着剤であり、発熱開始温度が100℃以上、150℃以下であることを特徴とするものである。また、室温(25℃)で粉体(固体)の有機過酸化物を使用することを特徴とするものである。発熱開始温度を100℃以上、150℃以下とすることにより、保存安定性が高く、且つ、180～210℃の加熱により短時間に接着することができる。発熱開始温度が100℃未満では、反応性が増加する反面、保存安定性は低下するため好ましくない。一方、発熱開始温度が150℃を超えて高いと短時間で接続する際に十分に硬化が進行しないため、接続信頼性が低下してしまう。発熱開始温度は、示差走査熱量計(DSC)を用い、昇温速度10℃/分で

測定した。

【0009】本発明で使用する有機過酸化物は、加熱によってラジカルを発生させる硬化剤であり、室温（25℃）で粉体（固体）の有機過酸化物であり、1分間の半減期分解温度が180℃以下であり、且つ、100時間の半減期分解温度が40℃以上であると、室温での有機過酸化物の分解がなく、保存安定性が高い回路接続用フィルム状接着剤を得ることができる。さらに、粉体（固体）を配合するため、フィルム中の液状成分であるアクリレート化合物、メタクリレート化合物およびシランカップリング剤を室温状態で増粘するため、フィルム中で液状成分の安定化、フィルム形成性の向上、保存中に液状のアクリレート成分、メタクリレート成分がしみ出すことの防止、さらにフィルムの取り扱い性を向上させることができる。液体の有機過酸化物では、粉体の場合に比べフィルム中の液状成分の粘度を下げたり、フィルム成形時やフィルム保存時に揮発し、反応性が低下する場合がある。

【0010】本発明で使用する有機過酸化物としては、ジアシルパーオキシド、パーオキシジカーボネート、パーオキシエステル、パーオキシケタール、ジアシルパーオキシド、ハイドロパーオキシド、シリルパーオキシドなどから選定できる。また、回路部材の接続端子の腐食を抑えるために、硬化剤中に含有される塩素イオンや有機酸は5000ppm以下であることが好ましく、さらに、加熱分解後に発生する有機酸が少ないものがより好ましい。具体的には、パーオキシエステル、パーオキシケタール、ジアシルパーオキシド、ハイドロパーオキシド、シリルパーオキシドから選定され、パーオキシエステル、ジアシルパーオキシドから選定されることがより好ましい。上記の有機過酸化物は、適宜混合して用いることができる。

【0011】パーオキシエステルとしては、クミルパーオキシネオデカノエート、1, 1, 3, 3, -テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、1-シクロヘキシル-1-メチルエチルパーオキシネオデカノエート、*t*-ヘキシルパーオキシネオデカノエート、*t*-ブチルパーオキシピバレート、1, 1, 3, 3, -テトラメチルブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(2-エチルヘキサノイルパーオキシ)ヘキサン、1-シクロヘキシル-1-メチルエチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシイソブチレート、*t*-ブチルパーオキシマレイン酸、1, 1-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)シクロヘキサン、*t*-ヘキシルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、*t*-ブチルパーオキシ-3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシラウレート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*m*-トルオ

イルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ビス(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキシルモノカーボネート、*t*-ヘキシルパーオキシベンゾエート、*t*-ブチルパーオキシアセテート、ビス(*t*-ブチルパーオキシ)イソフタレート等が挙げられる。

【0012】ジアシルパーオキシドとして、痒Cビス(*t*-ブチルパーオキシ)ジイソプロピルベンゼン、ジクミルパーオキシド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキサン、*t*-ブチルクミルパーオキシド等が挙げられる。

【0013】ハイドロパーオキシドとして、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキシド、クメンハイドロパーオキシド等が挙げられる。

【0014】ジアシルパーオキシドとして、イソブチルパーオキシド、2, 4-ジクロロベンゾイルパーオキシド、3, 5, 5-トリメチルヘキサノイルパーオキシド、オクタノイルパーオキシド、ラウロイルパーオキシド、ステアロイルパーオキシド、スクシンックパーオキシド、ベンゾイルパーオキシトルエン、ベンゾイルパーオキシド等が挙げられる。

【0015】パーオキシジカーボネートとしては、ジ-*n*-プロピルパーオキシジカーボネート、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、ビス(4-*t*-ブチルシクロヘキシル)パーオキシジカーボネート、ジ-2-エトキシメトキシパーオキシジカーボネート、ジ(2-エチルヘキシルパーオキシ)ジカーボネート、ジメトキシブチルパーオキシジカーボネート、ジ(3-メチル-3-メトキシブチルパーオキシ)ジカーボネート等が挙げられる。

【0016】パーオキシケタールとしては、1, 1-ビス(*t*-ヘキシルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-ビス(*t*-ヘキシルパーオキシ)シクロヘキサン、1, 1-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-(*t*-ブチルパーオキシ)シクロデカン、2, 2-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)デカン等が挙げられる。

【0017】シリルパーオキシドとして、*t*-ブチルトリメチルシリルパーオキシド、ビス(*t*-ブチル)ジメチルシリルパーオキシド、*t*-ブチルトリビニルシリルパーオキシド、ビス(*t*-ブチル)ジビニルシリルパーオキシド、トリス(*t*-ブチル)ビニルシリルパーオキシド、*t*-ブチルトリアリルシリルパーオキシド、ビス(*t*-ブチル)ジアリルシリルパーオキシド、トリス(*t*-ブチル)アリルシリルパーオキシド等が挙げられる。これらの遊離ラジカルを発生する有機過酸化物は、単独または混合して使用することができ、分解促進剤、抑制剤等を混合して用いてもよい。本

発明で用いると好ましい室温で粉体（固体）の有機過酸化化物としては、高反応性とポットライフの点から1時間の半減期分解温度が180℃以下であり、且つ、100時間の半減期分解温度が40℃以上である有機過酸化化物が好ましい。半減期1時間の分解温度が180℃を超えて高い場合は接続時の加熱によって発生するラジカル量が減少し、接着に必要な接着力が得られないため好ましくない。また、半減期100時間の分解温度が40℃未満では保存時に有機過酸化化物の開裂によってラジカルが発生し、アクリレート化合物、メタクリレート化合物が反応して接続時の流動性が低下するため好ましくない。このような有機過酸化化物の具体例として α -ブチルパーオキシマレイン酸、2, 5-ジメチル-2, 5-ビス（ベンゾイルパーオキシ）ヘキサン、ビス（ α -ブチルパーオキシ）イソフタレートなどが挙げられる。これらの有機過酸化化物は単独または混合して使用することができ、分解促進剤、抑制剤等を混合して用いてもよい。有機過酸化化物の配合量はラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物またはメタクリレート化合物100重量部に対し1~20重量部が好ましく、5~10重量部がより好ましい。この範囲より少ないと、硬化が十分に進行せず、接着剤の凝集力が低下し接着性に劣り、また多いと、硬化は十分であるが、フィルム状接着剤の界面での接着に劣るようになる。

【0018】本発明で用いるラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物またはメタクリレート化合物は、ラジカルにより重合する官能基を有する物質であり、これらは、モノマー、オリゴマーのいずれの状態でも用いることが可能であり、モノマーとオリゴマーを併用することも可能である。アクリレート化合物またはメタクリレート化合物の具体例としては、エチレングリコールジアクリレート、エチレングリコールジメタクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、ジエチレングリコールジメタクリレート、トリメチロールプロパンジアクリレート、トリメチロールプロパンジメタクリレート、トリメチロールプロパントリメタクリレート、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテルトリアクリレート、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテルトリメタクリレート、トリエチレングリコールジアクリレート、トリエチレングリコールジメタクリレート、テトラエチレングリコールジアクリレート、テトラエチレングリコールジメタクリレート、ポリエチレングリコールジアクリレート、ポリエチレングリコールジメタクリレート、ヘキサプロピレングリコールジアクリレート、ヘキサプロピレングリコールジメタクリレート、ポリプロピレングリコールジアクリレート、ポリプロピレングリコールジメタクリレート、ブチレングリコールジアクリレート、ブチレングリコールジメタクリレート、ネオペンチルグリコールジアクリレート、ネオペン

チルグリコールジメタクリレート、1, 3-ブタンジオールジアクリレート、1, 3-ブタンジオールジメタクリレート、1, 4-ブタンジオールジアクリレート、1, 4-ブタンジオールジメタクリレート、1, 5-ペンタンジオールジアクリレート、1, 5-ペンタンジオールジメタクリレート、1, 6-ヘキサンジオールジアクリレート、1, 6-ヘキサンジオールジメタクリレート、ペンタエリスリトールジアクリレート、ペンタエリスリトールジメタクリレート、ペンタエリスリトールトリアクリレート、ペンタエリスリトールトリメタクリレート、エチレンオキシド変性トリメチロールプロパントリアクリレート、エチレンオキシド変性トリメチロールプロパントリメタクリレート、テトラメチロールメタンテトラアクリレート、テトラメチロールメタンテトラメタアクリレート、テトラメチロールプロパンテトラアクリレート、テトラメチロールプロパンテトラメタクリレート、ペンタエリスリトールテトラアクリレート、ペンタエリスリトールテトラメタクリレート、2-ヒドロキシ1, 3-ジアクリロキシプロパン、2-ヒドロキシ1, 3-ジメタアクリロキシプロパン、2, 2-ビス〔4-（アクリロキシメトキシ）フェニル〕プロパン、2, 2-ビス〔4-（メタアクリロキシメトキシ）フェニル〕プロパン、2, 2-ビス〔4-アクリロキシエトキシフェニル〕プロパン、2, 2-ビス〔4-メタクリロキシエトキシフェニル〕プロパン、2, 2-ビス〔4-アクリロキシジエトキシフェニル〕プロパン、2, 2-ビス〔4-メタクリロキシジエトキシフェニル〕プロパン、2, 2-ビス〔4-（アクリロキシポリエトキシ）フェニル〕プロパン、2, 2-ビス〔4-（メタアクリロキシポリエトキシ）フェニル〕プロパン、ビスフェノールAジアクリレート、ビスフェノールAジメタクリレート、ビスフェノールAジグリシジルエーテルジアクリレート、ビスフェノールAジグリシジルエーテルジメタクリレート、トリス（アクリロイロキシエチル）イソシアヌレート、トリス（メタアクリロイロキシエチル）イソシアヌレートウレタンジアクリレート化合物、ウレタンジメタアクリレート化合物等が挙げられる。これらは単独または併用して用いることができ、必要によっては、ハイドロキノン、メチルエーテルハイドロキノン類などの重合禁止剤を適宜用いてもよい。また、ジシクロペンチル基および/またはトリシクロデカニル基および/またはトリアジン環を有する場合は、耐熱性が向上するので好ましい。

【0019】本発明で用いるガラス転移温度が50℃以上で、150℃の溶融粘度が10000Pa・s以下の熱可塑性樹脂としては、ポリビニルブチラル樹脂、ポリビニルホルマール樹脂、ポリアミド樹脂、ポリエステル樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂、ポリヒドロキシポリエーテル樹脂などのポリマーが使用される。その中で、接着剤に使用した際の流動性、

硬化収縮の抑制効果および接続信頼性からガラス転移温度50℃以上のポリヒドロキシポリエーテル樹脂が好適に使用される。ガラス転移温度が50℃より低いとフィルムの形成性が低下し、タックが強くなるため、取り扱いが悪くなると共に、保存安定性が悪くなるため好ましくない。また、150℃での熔融粘度が10000 Pa・sを超えて大きいと接続時の流動性が低下し、回路基板の相対向する端子間の樹脂の排除が不十分となるため、接続信頼性が低下するため好ましくない。さらに、分子内にフルオレン骨格を有するポリヒドロキシポリエーテル樹脂がより好適に使用される。分子内にフルオレン骨格を有するポリヒドロキシポリエーテル樹脂は単独でも前記樹脂との混合物でも使用できる。これらの熱可塑性樹脂はカルボキシル基含有エラストマー、エポキシ基含有エラストマー、ラジカル重合性の官能基によって変性されていてもよい。特に、カルボキシル基含有エラストマーによって変性した高分子量のエポキシ樹脂と混合して使用した場合、応力緩和するため好ましい。

【0020】本発明で用いるラジカル重合性の官能基を有するシランカップリング剤としては、ラジカル重合性の官能基としてアクリル基、メタクリル基を持つものが使用される。ラジカル重合性の官能基を持たないシランカップリング剤では接着剤樹脂との結合が生じないため、接着力を発現することができない。シランカップリング剤の具体例としては、(3-アクリロキシプロピル)メチルジメトキシシラン、(3-アクリロキシプロピル)トリメトキシシラン、(メタクリロキシメチル)トリメトキシシラン、(メタクリロキシメチル)トリエトキシシラン、(3-メタクリロキシプロピル)メチルジメトキシシラン、(3-メタクリロキシプロピル)トリメトキシシラン、(3-メタクリロキシプロピル)メチルジエトキシシラン、(3-メタクリロキシプロピル)トリエトキシシラン、(3-メタクリロキシプロピル)トリス(メトキシエトキシ)シラン等が挙げられる。これらは単独または2種以上混合して用いても良い。シランカップリング剤の配合量は接着剤の総重量に対して5~15重量部が好ましい。この範囲より少ないと接着剤の凝集力が低下し接着力に劣り、多いとフィルム界面での接着性に劣るようになる。

【0021】また、本発明の回路接続用フィルム状接着剤はアクリル酸、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル、アクリロニトリル、グリシジルアクリレートおよびグリシジルメタクリレートの1種または2種以上をモノマー成分とした共重合体系アクリルゴム、ポリウレタンなどのエラストマーを含有することができる。エラストマーを含有した場合、応力緩和の効果が得られるので好ましい。

【0022】さらに、充填材、軟化剤、促進剤、老化防止剤、着色剤、難燃化剤、チキソトロピック剤、及びフェノール樹脂やメラミン樹脂、イソシアネート類等を含

有することもできる。充填材を含有した場合、接続信頼性等の向上が得られるので好ましい。

【0023】本発明の回路接続用フィルム状接着剤は導電性粒子がなくても、接続時に相対向する回路電極の直接接触により接続が得られるが、導電性粒子を含有した場合、より安定した接続が得られる。導電性粒子としては、Au、Ag、Ni、Cu、はんだ等の金属粒子やカーボン等があり、十分なポットライフを得るためには、表層はNi、Cuなどの遷移金属類ではなくAu、Ag、白金族の貴金属類が好ましくAuがより好ましい。また、Niなどの遷移金属類の表面をAu等の貴金属類で被覆したものでもよい。また、非導電性のガラス、セラミック、プラスチック等に前記した金属を被覆等により形成し、最外層を貴金属類で被覆したものでもよい。プラスチックを核とした場合や熱溶融金属粒子を核とした場合、加熱加圧により変形性を有するので接続時に電極との接触面積が増加したり、電極高さのばらつきを吸収し信頼性が向上するので好ましい。貴金属類の被覆層の厚みは良好な抵抗を得るためには、100オングストローム以上が好ましい。しかし、Ni等の遷移金属の上に貴金属類の層を設ける場合では、貴金属類層の欠損や導電粒子の混合分散時に生じる貴金属類層の欠損等により遷移金属が表面に露出するとその酸化還元作用で遊離ラジカルが発生し保存性低下を引き起こすため、300オングストローム以上が好ましい。導電性粒子は、接着剤樹脂成分100体積部に対して0.1~30体積部の範囲で用途により使い分ける。過剰な導電性粒子による隣接回路の短絡等を防止するためには0.1~10体積部とするのが好ましい。

【0024】また、回路接続用フィルム状接着剤を2層以上に分割し、遊離ラジカルを発生する有機過酸化物を含有する層とラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物またはメタクリレート化合物を含有する層に分離した場合、または、遊離ラジカルを発生する有機過酸化物を含有する層と導電粒子を含有する層に分離した場合、ポットライフの向上が得られる。

【0025】本発明の回路接続用フィルム状接着剤は、半導体チップの動作時、外部光源からの光による誤動作を防ぐために、フィルム状接着剤中にカーボンブラック、顔料、色素を添加することによって、黒色、褐色、青色等の遮光性フィルムとすることもできる。

【0026】本発明の回路接続用フィルム状接着剤は、ICチップと回路基板との電気的および機械的接続や電気回路相互の電気的および機械的接続に使用することができる。本発明の回路接続用フィルム状接着剤は、例えばフェイスダウン方式で半導体チップと回路基板を本発明の回路接続用フィルム状接着剤を介在させて接着固定すると共に両者の電極どうしを電気的に接続する場合に使用できる。すなわち、第一の接続端子を有する第一の回路部材と、第二の接続端子を有する第二の回路部材と

を、第一の接続端子と第二の接続端子を対向して配置し、前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子の間に本発明の回路接続用フィルム状接着剤を介在させ、加熱加圧して前記対向配置した第一の接続端子と第二の接続端子を電気的に接続させることができる。このような回路部材としては半導体チップ、抵抗体チップ、コンデンサチップ等のチップ部品、プリント基板、フレキシブルプリント基板等の回路基板、LCDパネル、PDPパネル、ELパネル等の画像表示基板、テープキャリアパッケージ、COF等の回路部品等が用いられる。これらの回路部材には接続端子が通常は多数（場合によっては単数でも良い）設けられており、前記回路部材の少なくとも1組がそれらの回路部材に設けられた接続端子の少なくとも一部を対向配置し、対向配置した接続端子間に本発明の回路接続用フィルム状接着剤を介在させ、加熱加圧して対向配置した接続端子どうしを電気的に接続して回路板とする。回路部材の少なくとも1組を加熱加圧することにより、対向配置した接続端子どうしは、直接接合により又は異方導電性接着剤の導電性粒子を介して電気的に接続することができる。

【0027】本発明の回路端子の接続方法は、ラジカル重合による硬化性を有する回路接続用フィルム状接着剤を表面が金、銀、錫及び白金族から選ばれる金属を用いて一方の電極回路の導体としたり表面をめっき等で被覆形成した後、もう一方の回路電極と位置合わせし加熱、加圧して接続することができる。

【0028】本発明の回路端子の接続方法において、回路電極を有する回路基板表面を洗浄して表面の汚染物質や酸化膜などを除去しておくことによって本発明の回路接続用フィルム状接着剤の回路基板への接着強度を増強させることによって接続信頼性を向上させることができる。回路基板表面の洗浄方法としては回路電極および配線に対する損傷の影響が小さいものであれば特に制限するものではない。洗浄の例としては、純水による洗浄、溶剤による洗浄またはふき取り、プラズマ処理などが挙げられる。

【0029】本発明においては、従来のラジカル硬化アクリレート樹脂系接着剤よりも短時間で接続が可能であり、かつ耐湿試験後も優れた接着強度を示すと共に、保存安定性、フィルム形成性、取り扱い性を向上させた電気・電子用の回路接続用フィルム状接着剤の提供が可能となる。

【0030】

【実施例】本発明で用いるガラス転移温度が50℃以上で、150℃の熔融粘度が10000Pa・s以下の熱可塑性樹脂として用いたフルオレン骨格含有ポリヒドロキシポリエーテル樹脂及びカルボキシル基含有ブタジエン系エラストマー変性高分子量フェノキシ樹脂の合成法を以下に示す。

【0031】〈ポリヒドロキシポリエーテル樹脂の合

成〉4,4-(9-フルオレニリデン)-ジフェノール45g、3,3',5,5'-テトラメチルピフェノールジグリシジルエーテル50gをN-メチルピロリジオン1000mlに溶解し、これに炭酸カリウム21gを加え、110℃で3時間攪拌した。攪拌後、多量のメタノールに滴下し、生成した沈殿物をろ取して目的物質である分子内にフルオレン骨格を持つポリヒドロキシポリエーテル樹脂(b)を75g得た。分子量を測定した結果(東ソー株式会社製GPC8020、カラム;東ソー株式会社製TSKgelG3000HXLとTSKgelG4000HXL、流速1.0ml/min)、ポリスチレン換算で $M_n=12,500$ 、 $M_w=30,300$ 、 $M_w/M_n=2.42$ であった。樹脂(b)をTHF(テトラヒドロフラン)に溶解させ、シャーレに塗布し、溶媒を気散させることによってキャストフィルムを作製した。キャストフィルムを動的粘弾性測定装置(レオメトリックサイエンティフィック社製RSA-II)を用いて測定し(昇温速度5℃/分、1Hz)、 $\tan\delta$ のピークによってガラス転移温度を測定した結果、ガラス転移温度95℃であった。キャストフィルムをずり粘弾性測定装置(レオメトリックサイエンティフィック社製ARES)を用いて測定し(昇温速度5℃/分、1Hz)、150℃での粘度を求めた結果、4800Pa・s(48,000ポイズ)であった。

【0032】〈カルボキシル基含有ブタジエン系エラストマー変性高分子量フェノキシ樹脂の合成〉窒素導入管、温度計、冷却管およびメカニカルスターラーを取り付けた2リットルの四つ口フラスコに、テトラブromビスフェノールA(FG-2000、帝人化成株式会社製商品名)333.83g、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(YD-8125、分子蒸留品、エポキシ当量172g/当量、東都化成株式会社製商品名)205.56gおよびN,N-ジメチルアセトアミド1257gを入れ、窒素雰囲気下、均一になるまで攪拌混合した。次に、水酸化リチウム0.94gを添加し、温度を徐々に上げながら120℃で9時間反応させた。反応の追跡は、一定時間ごとに反応溶液の粘度を測定し、粘度が増加しなくなるまで反応を行った。反応終了後、反応溶液を放冷し、これに活性アルミナ(200メッシュ)約420gを加えて一晩放置した。活性アルミナを濾過して、フェノキシ樹脂のN,N-ジメチルアセトアミド溶液を得た。次いで、窒素導入管、温度計、冷却管およびメカニカルスターラーを取り付けた1リットルの四つ口フラスコに、得られたフェノキシ樹脂のN,N-ジメチルアセトアミド溶液807.62g、末端カルボキシル基含有ブタジエン-アクリロニトリル共重合体(Hycar CTBNX1009-SP、宇部興産株式会社製商品名)50.88gを入れ、攪拌混合しながら十分に窒素置換した。次に、窒素雰囲気下で攪拌混合し、温度を徐々に上げながら溶剤が還流する状態で8.5時間加熱して、目的のエ

ラストマー変性高分子量フェノキシ樹脂のN, N-ジメチルアセトアミド溶液を得た。得られた溶液は茶褐色の透明なものであり、コーンプレート型粘度計(EMD型、株式会社トキメック製)で測定した粘度は約0.3 Pa・s(300 cP)であった。反応溶液の一部を大量のメタノール中に注いで固形物を析出させ、メタノール洗浄、減圧乾燥してエラストマー変性高分子量フェノキシ樹脂を得た。得られたエラストマー変性高分子量フェノキシ樹脂の分子量を東ソー株式会社製GPC8020、カラムは東ソー株式会社製TSKgel G3000 HXLとTSKgel G4000 HXL、流速1.0 ml/minで測定した結果、ポリスチレン換算で $M_n=18,200$ 、 $M_w=38,400$ 、 $M_w/M_n=2.11$ であった。この樹脂(c)をN, N-ジメチルアセトアミドに溶解させ、シャーレに塗布し、溶媒を気散させることによってキャストフィルムを作製した。キャストフィルムを動的粘弾性測定装置(レオメトリックサイエンティフィック社製RSA-II)を用いて測定し(昇温速度5℃/分、1 Hz)、 $\tan \delta$ のピークによってガラス転移温度を測定した結果、ガラス転移温度90℃であった。キャストフィルムをずり粘弾性測定装置(レオメトリックサイエンティフィック社製ARES)を用いて測定し(昇温速度5℃/分、1 Hz)、150℃での粘度を求めた結果、3070 Pa・s(30,700ポイズ)であった。以下、本発明を実施例及び比較例により具体的に説明する。実施例、比較例で用いた材料を表1に示した。

【0033】(実施例1) ガラス転移温度が50℃以上で、150℃の溶融粘度が10000 Pa・s以下の熱可塑性樹脂として、上記で合成したフルオレン骨格含有ポリヒドロキシポリエーテル樹脂(B)を、トルエン：酢酸エチル=1：1(重量比)の混合溶液に溶解した50重量%溶液を80重量部、上記で合成したカルボキシル基含有ブタジエン系エラストマー変性高分子量フェノキシ樹脂(C)をトルエン：酢酸エチル=1：1(重量比)の混合溶液に溶解した50重量%溶液を40重量部、ラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物としてジメチロールトリシクロデカンジアクリレート(A)40重量部、有機過酸化物として室温(25℃)で液状である1, 1-ビス(t-ヘキシルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン(1分間の半減期分解温度147℃、100時間の半減期分解温度69℃)(D)5重量部、ラジカル重合性の官能基を有するシランカップリング剤として(3-メタクリロキシプロピル)トリメトキシシラン(G)を2-ブタノンに添加して超音波で分散させた50重量%溶液を20重量部を攪拌してフィルム塗工用ワニス溶液を得た。この溶液をセパレータ(シリコン処理したポリエチレンテレフタレートフィルム、厚み80 μm)にロールコートで塗布し、70℃、10分乾燥し厚み20 μmの回路接続用

フィルム状接着剤を作製した。

【0034】(実施例2) 実施例1のフィルム塗工用ワニス溶液にNi/Auめっきポリスチレン粒子(平均粒子径5 μm)(I)10重量部を混合し、フィルム塗工用ワニス溶液を得、実施例1と同様にして厚み20 μmの回路接続用フィルム状接着剤を作製した。

【0035】(実施例3) 実施例2の熱可塑性樹脂としてフルオレン骨格含有ポリヒドロキシポリエーテル樹脂(B)を80重量部から120重量部にし、カルボキシル基含有ブタジエン系エラストマー変性高分子量フェノキシ樹脂(C)を添加しないこと以外は実施例2と同様にして厚み20 μmの回路接続用フィルム状接着剤を作製した。

【0036】(実施例4) 実施例2において有機過酸化物を、室温(25℃)で液状である1, 1-ビス(t-ヘキシルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン(D)5重量部から室温(25℃)で粉体である2, 5-ジメチル-2, 5-ビス(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン(1分間の半減期分解温度158℃、100時間の半減期分解温度83℃)(E)5重量部に変えた以外実施例2と同様にして厚み20 μmの回路接続用フィルム状接着剤を作製した。

【0037】(実施例5) 実施例3において有機過酸化物を、室温(25℃)で液状である1, 1-ビス(t-ヘキシルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン(D)5重量部から室温(25℃)で粉体である2, 5-ジメチル-2, 5-ビス(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン(E)5重量部に変えた以外実施例3と同様にして厚み20 μmの回路接続用フィルム状接着剤を作製した。

【0038】(比較例1) 実施例4において、シランカップリング剤(G)を配合しないこと以外は、実施例4と同様にして厚み20 μmの回路接続用フィルム状接着剤を作製した。

【0039】(比較例2) 実施例4において、シランカップリング剤(F)を、ラジカル重合性の官能基を有しないシランカップリング剤(H)に変更した以外は、実施例4と同様にして厚み20 μmの回路接続用フィルム状接着剤を作製した。

【0040】(比較例3) 実施例4において、有機過酸化物(E)を、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキシン-3(1分間の半減期分解温度194℃、100時間の半減期分解温度109℃)

(F)に変更した以外は、実施例4と同様にして厚み20 μmの回路接続用フィルム状接着剤を作製した。

【0041】(比較例4) 実施例4において、ラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物を、単官能のアクリレート化合物であるイミドアクリレート(A')に変更した以外は、実施例4と同様にして厚み20 μmの回路接続用フィルム状接着剤を作製した。

【0042】実施例1～5、比較例1～4で使用した材料を表1に、また、配合を表2に示した。

【0043】

【表1】

項目	材料名	記号	商品名	メーカー
アクリレート	ジメチロールトリシクロデカンジアクリレート	A	DCP-A	共栄社化学株式会社
	イミダアクリレート	A'	TO-1429	東亜合成株式会社
熱可塑性樹脂	フルオレン骨格含有ポリヒドロキシポリエーテル樹脂 (Mw30,300, Mn12,500, 150℃溶融粘度4800Pa・s)	B	—	—
	カルボキシ末端ブチロニトリル樹脂変性高分子量エポキシ樹脂 (Mw38,400, Mn18,200, 150℃溶融粘度3070Pa・s)	C	—	—
	1,1-ビス(4-ヘキシルパーオキシ)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン	D	パーヘキサTM H	日本油脂株式会社
有機過酸化化物	2,5-ジメチル-2,5-ビス(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン	E	パーヘキサ25 Z	日本油脂株式会社
	2,5-ジメチル-2,5-ジ(4-ブチルパーオキシ)ヘキシン-3	F	パーヘキシン25B	日本油脂株式会社
シランカップリング剤	(3-メタクリロキシプロピル)トリメトキシシラン	G	SZ6030	東レ・ダウコーニング・シリコン株式会社
	(3-グリシドキシプロピル)トリメトキシシラン	H	SH6040	東レ・ダウコーニング・シリコン株式会社
導電性粒子	Ni/Auめっきポリスチレン粒子(平均粒径5μm)	I	—	—

【0044】

【表2】

項目		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
アクリレート	A	40	40	40	40	40	40	40	40	—
	A'	—	—	—	—	—	—	—	—	40
熱可塑性樹脂	トルエン/酢酸エチル	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	B 50%溶液	80	80	120	80	120	80	80	80	80
	C "	40	40	—	40	—	40	40	40	40
有機過酸化化物	D	5	5	5	—	—	—	—	—	—
	E	—	—	—	5	5	5	5	—	5
	F	—	—	—	—	—	—	—	5	—
	G 2-ブタノール50%溶液	20	20	20	20	20	—	—	20	20
シランカップリング剤	H	—	—	—	—	—	10	—	—	—
	I	—	10	10	10	10	10	10	10	10
導電性粒子	未処理—初期	42	42	38	32	33	2	1	2	3
	未処理—耐湿後	41	41	36	32	32	1	0.4	4	6
	40℃処理後—初期	3	3	2	29	28	2	1	2	2
	40℃処理後—耐湿後	3	3	3	31	30	1	0.4	4	5
	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	OPEN	OPEN	OPEN	OPEN
接続抵抗(Ω)	未処理—初期	0.2	0.2	0.2	1.5	2.2	—	—	—	—
	未処理—耐湿後	0.2	0.2	0.2	1.5	2.2	—	—	—	—
	40℃処理後—初期	OPEN	OPEN	OPEN	0.1	0.1	OPEN	OPEN	OPEN	OPEN
	40℃処理後—耐湿後	—	—	—	1.4	2.3	—	—	—	—
	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	OPEN	OPEN	OPEN	OPEN
耐湿後外観(未処理/40℃処理)	未処理—初期	O/O	O/O	O/O	O/O	O/O	—/—	—/—	—/—	—/—
	未処理—耐湿後	O/O	O/O	O/O	O/O	O/O	—/—	—/—	—/—	—/—
発熱開始温度(℃)		115	115	115	125	125	125	125	161	125

【0045】本発明で使用する回路の接続と測定法を以下に示す。

〈回路の接続〉金めっきパンプ(50μm×50μm、40μm高さ15μm、スペース50μm)付きICチップ(1.5mm×1.7mm×0.55mm)と0.7mm厚のガラス上にITOで電極を作製した基板とを上記の回路接続用フィルム状接着剤を介在させて、200℃、100MPa(パンプ面積換算)、3秒加熱加圧して接続し、接続信頼性測定用サンプルを作製した。この時、あらかじめガラス基板上に、回路接続用フィルム状接着剤を貼り付けた後、70℃、0.5MPaで5秒間加熱加圧して仮接続し、その後、セパレータであるPETフィルムを剥離して上記の条件でICチップと接続

し、接続信頼性測定用サンプルを作製した。

【0046】〈接続信頼性測定方法〉接続信頼性測定用サンプルの接続直後の接続抵抗と、耐湿試験(85℃、85%RH)に500時間放置後の接続抵抗を四端子法で測定した。接続抵抗が測定できないものをOPEN不良とした。

〈耐湿後の外観検査〉上述した接続信頼性測定用サンプルの耐湿試験後の接続面を金属顕微鏡で観察した。剥離の起きていないものを○とし、剥離が観察されたものを×とした。

〈接着強度測定方法〉金めっきパンプ(50μm×50μm、パンプ高さ15μm、スペース10μm)付きICチップ(1.0mm×1.0mm×0.55mm)と

0.7mm厚のガラス基板とを上記の回路接続用フィルム状接着剤を介在させて、200℃、100MPa（パンプ面積換算）、3秒で接続した後、ボンドテスト（Dyge社製）を用いて、ボンディング直後と耐湿試験（85℃、85%RH）168時間後のせん断接着強度を測定した。

〈発熱開始温度の測定〉示差走査熱量計（DSC、ティー・エー・インスツルメント・ジャパン株式会社製TA2000サーマルアナリシスシステム）を用いて、昇温速度10℃/分で回路接続用フィルム状接着剤の発熱開始温度を測定した。

【0047】〈保存安定性試験〉40℃の恒温槽に回路接続用フィルム状接着剤を5日間放置した後、上記方法により接着強度と接続信頼性の測定を行った。

【0048】これらの測定結果を、表2に示した。実施例1、2は、導電性粒子の有無の違いであるが、接続強度や接続抵抗等において表2では差は見られないが、導電性粒子を配合することにより安定した接続が得られる。比較例1は、実施例4のラジカル重合性の官能基を有するシランカップリング剤を配合しない場合であり、実施例4に比較して、接着強度が著しく低下し、接続抵抗が上昇した。また、シランカップリング剤でラジカル重合性の官能基を有さないエポキシ基を有するシランカップリング剤を配合した比較例2でも、接着強度が著しく低下し、接続抵抗が上昇した。比較例3は、実施例4の有機過酸化物を変えて発熱開始温度が150℃を超えて高い場合であり、接着強度が著しく低下し、接続抵抗が上昇した。また、比較例4は、実施例4のラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物に変えて、単官能のアクリレート化合物を使用した場合であるが、同じく接着強度が著しく低下し、接続抵抗が上昇した。これらに対し、本発明の実施例1～実施例5では、200℃、3秒間の短時間接続で接着強度、接続抵抗、耐湿後の外観が良好であった。特に、（1）ラジカル重合性の2官能以上のアクリレート化合物、（2）ガラス転移温度が50℃以上で、150℃の熔融粘度が10000Pa・s以下の熱可塑性樹脂、（3）室温（25℃）で粉体の有機過酸化物、（4）ラジカル重合性の官能基を有するシランカップリング剤を必須とし、発熱開始温度が100℃以上、150℃以下である場合が、接着強度、接続抵抗、耐湿後の外観が良好となった。

【0049】

【発明の効果】本発明によれば、従来のラジカル硬化アクリレート樹脂系接着剤よりも短時間で接続が可能であり、かつ耐湿試験後も優れた接着強度を示すと共に、保存安定性、フィルム形成性、取り扱い性に優れた電気・電子用の回路接続用フィルム状接着剤の提供が可能となる。

フロントページの続き

Fターム(参考) 4J004 AA01 AA10 AA12 AA13 AA15

AA16 BA02 FA05

30

4J040 DD051 DD052 EB021 EB022

EC001 EC002 EC311 EC312

ED001 ED002 EE061 EE062

EG001 EG002 FA141 FA142

FA161 FA162 FA171 FA172

FA261 FA262 FA291 FA292

HA066 HB41 HD32 HD35

JA09 JB02 KA30 KA32 LA01

LA02 LA06 LA09 LA11 MA02

MA05 MB03 NA20 NA21 PA30

40

5F044 KK06 LL07 LL11 LL15